

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-110687

(43)Date of publication of application : 28.04.1997

(51)Int.Cl.

A61K 31/35

A61K 7/16

// C07D311/62

(21)Application number : 08-213045

(71)Applicant : TAIYO KAGAKU CO LTD

(22)Date of filing : 23.07.1996

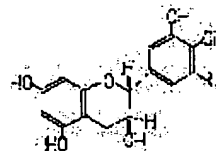
(72)Inventor : SAKANAKA SENJI  
ITOU YOSHIMI  
KIN BUSAKU  
YAMAZAKI NAGATAKA

## (54) CARIOSTATIC AND ANTI-PERIODONTITIS COMPOSITION

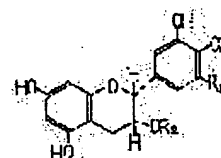
## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a cariostatic and anti-periodontitis composition having specific antibacterial action against *Streptococcus mutans* and high safety in continuous use for a long period of time, containing a specific polyphenol compound as an active component.

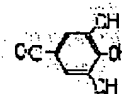
SOLUTION: This cariostatic and anti-periodontitis composition contains a polyphenol compound expressed by formula I or formula II (R1 is H or a hydroxyl; R2 is H, 3,4,5-trihydroxybenzoyl group or formula III) [e.g. (+)-catechin]. For instance, the compound can be obtained by extracting *Camellia sinensis*, (L.) O.Kuntze with a sufficient amount of water or an alcohol at a room temperature, subjecting an ethyl acetate-soluble fraction of the extract to silica gel chromatography and eluting, in turn.



I



II



III

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 23.07.1996

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 20.01.1998

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2903210

[Date of registration] 26.03.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 10-02359

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection] 17.02.1998

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-110687

(43) 公開日 平成9年(1997)4月28日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 6 1 K 31/35	ACK		A 6 1 K 31/35	ACK
7/16			7/16	
// C 0 7 D 311/62			C 0 7 D 311/62	

審査請求 有 発明の数 1 F D (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平8-213045  
(62) 分割の表示 特願昭62-248303の分割  
(22) 出願日 昭和62年(1987)10月1日

(71) 出願人 000204181  
太陽化学株式会社  
三重県四日市市赤堀新町9番5号  
(72) 発明者 阪中 専二  
三重県四日市市赤堀新町9番5号 太陽化  
学株式会社内  
(72) 発明者 伊藤 よし美  
三重県四日市市赤堀新町9番5号 太陽化  
学株式会社内  
(72) 発明者 金 武祚  
三重県四日市市赤堀新町9番5号 太陽化  
学株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 抗う蝕及び抗歯周病組成物

(57) 【要約】

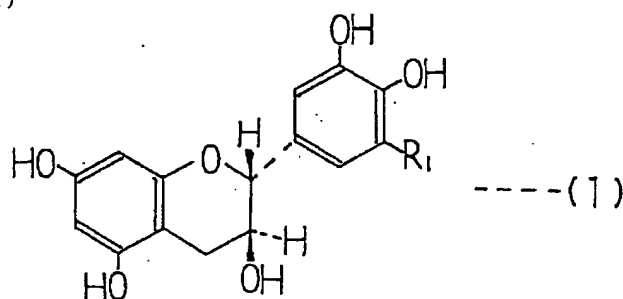
【課題】 幼児のう蝕や成人のう蝕により誘発される歯周病の予防に有効な組成物を提供する。

【解決手段】 茶に含まれるポリフェノール化合物を用いることで上記課題を解決する。

## 【特許請求の範囲】

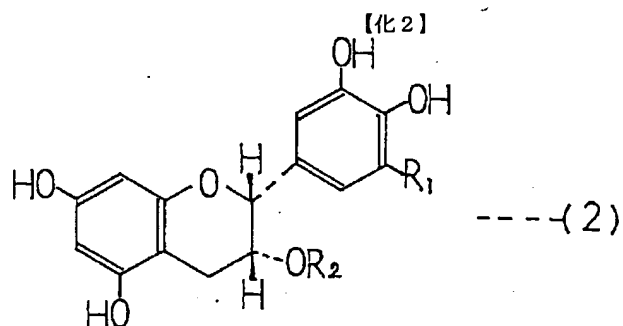
## 【請求項 1】 一般式 (1)

## 【化 1】



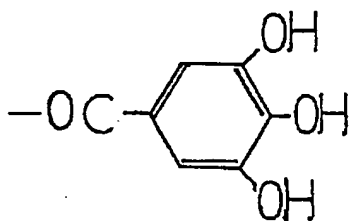
## 及び一般式 (2)

## 【化 2】



(式中 R<sub>1</sub> は水素原子またはヒドロキシル基を示し、R<sub>2</sub> は水素原子または、3, 4, 5-トリヒドロキシベンゾイル基

## 【化 3】



を示す) で表されるポリフェノール化合物を有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、う蝕及び歯周病の予防に有効な組成物に関する。本発明の、抗う蝕及び抗歯周病組成物は優れた抗う蝕作用及び抗歯周病作用を有しており、砂糖含有飲料物、特に菓子やアメ等を食べる機会が多い幼児のう蝕や成人のう蝕により誘発される歯周病の予防に極めて有効である。

## 【0002】

【従来の技術】 口腔外科領域の 2 大疾患である、う蝕及び歯周病の原因は、いずれも口腔内細菌が引き金となって発生することが近年の研究により明らかにされている。特に、口腔内細菌 *Streptococcus mutans* (ス

*Streptococcus mutans*) が飲食物中のショ糖から粘着性のある多糖を合成し、その合成された多糖中で *Streptococcus mutans* はじめ種々の細菌 (乳酸菌やグラム陰性菌) が繁殖し遂に菌叢ともいうべき歯垢を形成する。また、*Streptococcus mutans* 等の細菌は、種々の糖から乳酸などの有機酸を生成し、この有機酸が歯垢中に滞留してエナメル層を侵し、う蝕を誘発する。更には歯垢中のグラム陰性菌毒素による歯周病の発生を引き起こすことが知られている。従って、このう蝕や歯周病の発生を予防するためには、歯垢を形成する原因菌である *Streptococcus mutans* の増殖を抑制することが最も効果的な方法である。従来、*Streptococcus mutans* の口腔内への定着を抑制するためクロールヘキシジンのような細菌剤或いは、各種の抗生物質が検討されてきた (浜田茂幸「虫歯はどうしてできるか」1982 年 2 月 22 日、岩波新書 P. 125 ~ P. 133)。しかしながらこれらの技術では、必ずしも満足すべき結果が得られていない。すなわちクロールヘキシジンなどの殺菌剤は毒性が高く不快な苦味があり、かつ歯や口腔粘膜が着色するという欠点をも有する。また一般に、抗生物質や殺菌剤は長期連用に不適であり、口腔内細菌を無差別に死滅させて、常在菌叢の均衡をくずすために菌交代症などを引き起こす。また、ときには腸内細菌にまで影響する等、好ましくない状況をもたらすことが多い。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明者らは、ストレ

プトコッカス・ミュータンスに対して特異的に抗菌作用を示し、かつ長期の運用に於いて安全性の高い物質を探るべく鋭意研究を重ねた結果、ツバキ科の植物、特に我々が日常飲料に供している茶に含まれるポリフェノール化合物が優れた抗う蝕及び抗菌周病活性を有することを見出した。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者には、茶 (*Camellia sinensis*, (L.) O. Kuntze) に含まれるポリフェノール化合物を有効成分と

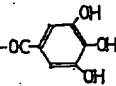
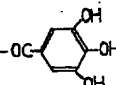
する安全性の高い優れた、抗う蝕及び抗菌周病組成物を得ることに成功した。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明のポリフェノール化合物とは、特許請求の範囲記載の一般式(1)及び一般(2)で表される表1に示した6種類のカテキン類緑体化合物をさす。

【0006】

【表1】

	式	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	一般名
化合物I	(1)	H	H	(+) - カテキン
化合物II	(2)	H	H	(-) - エピカテキン
化合物III	(1)	OH	H	(+) - ガロカテキン
化合物IV	(2)	OH	H	(-) - エピガロカテキン
化合物V	(2)	H		(-) - エピカテキン ガレード
化合物VI	(2)	OH		(-) - エピガロカテキン ガレード

【0007】本発明のポリフェノール化合物は、茶の水もしくはアルコール抽出物の酢酸エチル可溶画分より得ることができるが、他の原料起源のもの及び化学合成品でも差し支えない。本発明のポリフェノール化合物の典型的調製法を例示すると次のようである。まず茶を十分量的の水もしくは、アルコールで室温抽出する。抽出後、公知の方法にて残渣を分離し抽出液を得る。抽出液から溶媒を留去し、その残留物に水を加え溶解後へキサン、クロロホルム及び酢酸エチルを順次用いて分配を行い、へキサン可溶画分、クロロホルム可溶画分及び酢酸エチル可溶画分を得る。本操作におけるへキサン及びクロロホルムによる分配は、水もしくはアルコール抽出物の着色度及び粘度等の状況により省略することができるが、酢酸エチル可溶画分の純度を上げるためには、へキサン及びクロロホルムによる分配の実施が望ましい。

【0008】抽出に用いることのできるアルコールは、メチルアルコール、エチルアルコール、*n*-プロピルアルコール、イソプロピルアルコール、ブチルアルコール等の低級アルコールが操作性・抽出効率の点から好ましい。更に上記で得られた酢酸エチル可溶画分をシリカゲルカラムクロマトグラフィーに付し、クロロホルム-メタノール(20:1, V/V)及びクロロホルム-メタノール(10:1, V/V)の溶媒にて順次溶出するこ

とにより表1の6種化合物を得ることができる。また必要に応じて更にセファデックスLH-20に付し、適当な溶媒例えばメタノールにて溶出することにより、或いは、リサイクルHPLC(日本分析工業製, LC-908, GS-320カラム, 溶媒メタノール)を用いることにより、より高純度の表1の6種化合物を得ることができる。このポリフェノール化合物は、茶の抗う蝕性成分として報告がある無機フッ素類(池ヶ谷賢次郎, 食品と開発, vol. 122, No. 3, p. 22)とは明らかに異なり、その効果について本発明によりはじめて明らかにされたものである。

【0009】本発明の抗う蝕及び抗始終病組成物の有効成分であるポリフェノール化合物は、口腔内細菌ストレプトコッカス・ミュータンスに対する抗菌性試験において極めて優れた結果を示した。う蝕及び歯周病の予防に有用なこれらの作用につき、以下に試験例を挙げて詳細な説明する。

試験例 抗菌活性の測定

試験管に5mlのブレインハートインヒュージョン(BHI)培地を加え、120℃, 15分間オートクレーブした後、これにメチルアルコールに溶解された試料溶液100μlと、予め24~48時間培養された菌の懸濁液100μlを加え、37℃にて静置培養する。BHI

培地中の試料濃度は表中に示す。培養24時間及び48時間後の生菌数を1.5%寒天添加BHI培地上にて測定した。対照には試料溶液の代わりにメタノールのみを加えた。

#### 試料

1. 表1の化合物 I
2. 表1の化合物 II
3. 表1の化合物 III
4. 表1の化合物 IV
5. 表1の化合物 V
6. 表1の化合物 VI

#### 【0010】試験に用いた菌株

1. ストレプトコッカス・ミュータンス

(*Streptococcus mutans* MT8148)

表2～表7は、ストレプトコッカス・ミュータンスに対する本発明のポリフェノール化合物の抗菌試験の結果で化合物I；(+) - カテキン

ある。化合物I, II, III, IV, V及びVIのいずれもストレプトコッカス・ミュータンスに対し増殖阻止効果を示した。増殖阻止濃度は化合物I, II, IV, V及びVIは、いずれも500 $\mu$ g/mlであり、化合物IIIは、より低濃度の125 $\mu$ g/mlであった。試験に用いたストレプトコッカス・ミュータンスMT8148株は、日本人児童の虫歯感染者に多くみられる血清型C型の菌であることから、本発明の抗う蝕及び抗歯周病組成物の有効性が証明される。しかも、本発明のポリフェノール化合物は、古くから飲用に供されている茶由来のものであり、茶の成分として多量に含まれていることから、その安全性は歴史的経験から既に実証されている。また、口腔に何ら刺激を与えず、歯牙の着色などの害作用も示さないことから、う蝕及び歯周病予防効果を有する成分として使用するのに極めて好適な物質である。

#### 【0011】

#### 【表2】

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	24 h r	48 h r
1.0	$3.3 \times 10^4$	$3.9 \times 10^5$	$1.3 \times 10^6$
0.5	$3.3 \times 10^4$	$9.6 \times 10^5$	$1.2 \times 10^6$
0.25	$3.3 \times 10^4$	$1.0 \times 10^6$	$6.4 \times 10^5$
0.125	$3.3 \times 10^4$	$1.5 \times 10^6$	$7.2 \times 10^5$
0.0625	$3.3 \times 10^4$	$4.0 \times 10^6$	$8.6 \times 10^5$
0	$3.3 \times 10^4$	$2.6 \times 10^6$	$1.8 \times 10^6$

#### 【0012】

#### 【表3】

## 化合物II; (-) -エピカテキン

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	2 4 h r	4 8 h r
1. 0	$3.3 \times 10^4$	$3.1 \times 10^5$	$7.2 \times 10^4$
0. 5	$3.3 \times 10^4$	$5.8 \times 10^6$	$1.6 \times 10^9$
0. 25	$3.3 \times 10^4$	$4.2 \times 10^8$	$3.1 \times 10^6$
0. 125	$3.3 \times 10^4$	$2.3 \times 10^8$	$2.7 \times 10^6$
0. 0625	$3.3 \times 10^4$	$4.4 \times 10^9$	$9.0 \times 10^5$
0	$3.3 \times 10^4$	$2.6 \times 10^9$	$1.8 \times 10^6$

【0013】

【表4】

## 化合物III; (+) -ガロカテキン

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	2 4 h r	4 8 h r
1. 0	$1.2 \times 10^5$	0	0
0. 5	$1.2 \times 10^5$	$1.6 \times 10^4$	0
0. 25	$1.2 \times 10^5$	$3.0 \times 10^4$	0
0. 125	$1.2 \times 10^5$	$6.6 \times 10^6$	$9.7 \times 10^8$
0. 0625	$1.2 \times 10^5$	$2.0 \times 10^9$	$1.3 \times 10^7$
0	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{10}$	$1.5 \times 10^7$

【0014】

【表5】

## 化合物IV; (-) -エピガロカテキン

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	2 4 h r	4 8 h r
1. 0	$1.2 \times 10^5$	$1.4 \times 10^5$	0
0. 5	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^7$	$2.1 \times 10^9$
0. 25	$1.2 \times 10^5$	$2.4 \times 10^9$	$2.0 \times 10^7$
0. 125	$1.2 \times 10^5$	$1.2 \times 10^{10}$	$2.9 \times 10^7$
0. 0625	$1.2 \times 10^5$	$4.3 \times 10^9$	$1.9 \times 10^7$
0	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{10}$	$1.5 \times 10^7$

【0015】

【表6】

## 化合物V; (-) -エピカテキンガレート

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	2 4 h r	4 8 h r
1. 0	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^4$	$1.3 \times 10^5$
0. 5	$1.2 \times 10^5$	$2.3 \times 10^7$	$3.9 \times 10^7$
0. 25	$1.2 \times 10^5$	$4.4 \times 10^9$	$1.5 \times 10^7$
0. 125	$1.2 \times 10^5$	$2.4 \times 10^9$	$1.1 \times 10^7$
0. 0625	$1.2 \times 10^5$	$2.7 \times 10^9$	$1.1 \times 10^7$
0	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{10}$	$1.5 \times 10^7$

【0016】

【表7】



## 化合物VI; (-) -エピガロカテキンガレート

試料濃度 (mg/ml)	生 菌 数 (個/ml)		
	0 h r	2 4 h r	4 8 h r
1. 0	$1.2 \times 10^5$	$3.7 \times 10^4$	$2.9 \times 10^4$
0. 5	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^7$	$5.7 \times 10^7$
0. 2 5	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{10}$	$1.3 \times 10^7$
0. 1 2 5	$1.2 \times 10^5$	$3.8 \times 10^9$	$7.6 \times 10^7$
0. 0 6 2 5	$1.2 \times 10^5$	$1.9 \times 10^9$	$2.0 \times 10^7$
0	$1.2 \times 10^5$	$1.1 \times 10^{10}$	$1.5 \times 10^7$

## 【0017】使用態様

本発明のポリフェノール化合物を、う蝕予防用或いは歯周病予防用組成物として使用するためには適当な口腔用製剤として使用するのが好ましい。この様な口腔用製剤は、液剤、固形剤、半固形剤のいずれであってもよく、好ましい製剤としては、歯みがき剤、含嗽剤、トローチ剤、うがい薬、塗布液剤、チューインガム等があげられる。これらの口腔用製剤を製造するのに使用される賦形剤、または補助剤は、通常この種の目的に使用されるものから剤形に応じて適宜選択すればよく、特に制限されるものではないが、例えば乳糖、デンプン、コーンスターチ、ステアリン酸マグネシウム、第2磷酸カルシウム・2水和物、ソルビット、カルボキシメチルセルロース、サッカリン、ラウリル硫酸ナトリウム、グリセリン、ソジウムカルボキシメチルロース、無水ケイ酸、ゼラチン、二酸化チタン、メントール、脂肪酸、クエン

酸、ポリエチレングリコール、ソジウムラウロイルサルコシネート、炭酸カルシウム、アルコール、カラギーナン、ソジウムアシルタウレート、ペプトン、アラビアゴム、ラウリルジエタノールアミド等が使用される。上記の製剤に、フッ化ナトリウム、フッ化リン、フッ化リン酸ナトリウムなどのフッ化物を配合し、そのう蝕予防効果を一層高めることもでき、塩化ナトリウムを加えたり保存剤、香料及び着色剤等を適宜添加することもできる。この様にして製造されるう蝕予防用或いは歯周病予防用の口腔製剤中に占める本発明のポリフェノール化合物の量は剤形によっても異なるが、通常重量で約0.001% (重量/重量) 以上であることが望ましい。

## 【0018】

【実施例】次に、本発明を実施例により、詳しく説明するが、これにより本発明を限定するものではない。

## 実施例1 歯磨剤

第2リン酸カルシウム	42
グリセリン	19
カラギーナン	0.9
ラウリル硫酸ナトリウム	1.2
サッカリン	1.0
本発明のポリフェノール化合物	1.0
パラオキシ安息香酸ブチル	0.005
香 料	1.0
水	残 量
全 量	100.0 (重量%)

## 【0019】

## 実施例2 含嗽剤

エタノール (90%)	20.0
サッカリン	0.2
ソジウムアシルタウレート	0.5
ゼラチン	0.4

香 料	1. 0
本発明のポリフェノール化合物	1. 5
水	残 量
全 量	100. 0 (重量%)

## 【0020】

## 実施例3 トーロチ剤

アラビアゴム	6. 0
ブドウ糖	72. 0
本発明のポリフェノール化合物	1. 5
モノフルオロリン酸ナトリウム	0. 7
香 料	1. 0
乳 糖	19. 0
ステアリン酸マグネシウム	適 量
全 量	100. 0 (重量%)

## 【0021】

## 実施例4 チューインガム

酢酸ビニル樹脂	20. 0
ポリイソブチレン	3. 0
炭酸カルシウム	2. 0
ソルビトール	55. 0
マンニトール	15. 0
香 料	1. 0
本発明のポリフェノール化合物	4. 0
全 量	100. 0 (重量%)

【0022】本発明における実施態様を示すと以下のことが挙げられる。

- (1) (+) -カテキン、(-) -エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) -エピガロカテキン、(-) -エピカテキンガラート、(-) -エピガロカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (2) (+) -カテキンを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (3) (-) -エピカテキンを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (4) (+) -ガロカテキンを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (5) (-) -エピガロカテキンを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (6) (-) -エピカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (7) (-) -エピガロカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕及び抗歯周病組成物。
- (8) (+) -カテキン、(-) -エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) -エピガロカテキン、(-) -エピカテキンガラート、(-) -エピガロカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕組成物。
- (9) (+) -カテキン、(-) -エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) -エピガロカテキン、(-) -エピカテキンガラート、(-) -エピガロカ

キンガラートを有効成分とする抗歯周病組成物。

(10) (+) -カテキンを有効成分とする抗う蝕組成物。

【0023】(11) (-) -エピカテキンを有効成分とする抗う蝕組成物。

(12) (+) -ガロカテキンを有効成分とする抗う蝕組成物。

(13) (-) -エピガロカテキンを有効成分とする抗う蝕組成物。

(14) (-) -エピカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕組成物。

(15) (-) -エピガロカテキンガラートを有効成分とする抗う蝕組成物。

(16) (+) -カテキンを有効成分とする抗歯周病組成物。

(17) (-) -エピカテキンを有効成分とする抗歯周病組成物。

(18) (+) -ガロカテキンを有効成分とする抗歯周病組成物。

(19) (-) -エピガロカテキンを有効成分とする抗歯周病組成物。

(20) (-) -エピカテキンガラートを有効成分とする抗歯周病組成物。

(21) (-) -エピガロカテキンガラートを有効成分とする抗歯周病組成物。

【0024】(22) (+) -カテキン、(-) -エピ

カテキン、(+) - ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とする口腔用製剤。

(23) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とする歯磨き剤。

(24) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とする含嗽剤。

(25) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とするトローチ剤。

(26) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とするうがい薬。

【0025】(27) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とする塗布製剤。

(28) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、

(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートを有効成分とするチューインガム。

(29) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートが茶から抽出されたものである(1)記載の抗う蝕及び抗歯周病組成物。

(30) 茶が緑茶、ウーロン茶、紅茶である(29)記載の抗う蝕及び抗歯周病組成物。

(31) (+) - カテキン、(-) - エピカテキン、(+)-ガロカテキン、(-) - エピガロカテキン、(-) - エピカテキンガレート、(-) - エピガロカテキンガレートにフッ化ナトリウム、フッ化リン、フッ化リン酸ナトリウムなどのフッ化物を配合した抗う蝕及び抗歯周病組成物。

#### 【0026】

【発明の効果】本発明のポリフェノール化合物は、う蝕及び歯周病誘発の原因となる歯垢を生成する主要な原因菌であるストレプトコッカス・ミュータンスに対し、強い抗菌活性を示す。本発明に用いられる原料のポリフェノール化合物は、古来より飲用に供されている茶の成分であることからその安全性は極めて高く、その強い抗う蝕及び抗歯周病組成物を大量に供給することが可能であり、口腔衛生の改善に貢献することは勿論産業的にも極めて有用であると考えられる。

フロントページの続き

(72)発明者 山崎 長孝

三重県四日市市赤堀新町9番5号 太陽化学株式会社内